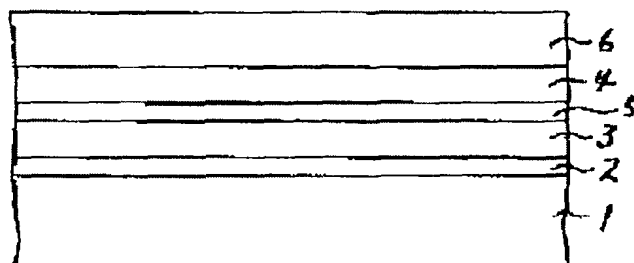


**MANUFACTURE OF ORGANIC EL ELEMENT****Publication number:** JP10162955**Publication date:** 1998-06-19**Inventor:** KUGA NORIYOSHI; HIRAYAMA IWAO; NAOI YASUSHI; TAKAHASHI HIDEO**Applicant:** SEIKO PRECISION KK**Classification:****- international:** *H05B33/10; H01L51/50; H05B33/14; H05B33/22; H05B33/10; H01L51/50; H05B33/14; H05B33/22; (IPC1-7): H05B33/10; H05B33/14; H05B33/22***- European:****Application number:** JP19960317450 19961128**Priority number(s):** JP19960317450 19961128**Report a data error here****Abstract of JP10162955**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To enhance adhesion between layers of stacked organic films, increase luminescent brightness, make manufacture easy, and reduce manufacturing cost. **SOLUTION:** An anode 2 is formed on a substrate 1 by sputtering of metal. A hole transportation layer 3 and an electron transportation layer 4 are formed on the anode 2 by a spin coating process, and a cathode 6 is formed on the layer 4. The hole transportation layer 3 and the electron transportation layer 4 are formed with a solution prepared by dissolving an organic material and a binder in a solvent, the solvent used for forming the electron transportation layer 4 slightly dissolves the organic material in the hole transportation layer 3. When the electron transportation layer 4 is formed, the organic materials contained in both layers 3, 4 are dissolved, and a mixed region 5 is formed in the boundary of the hole transportation layer 3 and the electron transportation layer 3, and adhesion between both layers 3, 4 is increased by the existence of the mixed region 5.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-162955

(43) 公開日 平成10年(1998) 6月19日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

H 0 5 B 33/10

H 0 5 B 33/10

33/14

33/14

33/22

33/22

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平8-317450

(22) 出願日 平成 8 年 (1996) 11 月 28 日

(71) 出願人 396004981

セイコープレシジョン株式会社

東京都中央区京橋二丁目 6 番 21 号

(72) 発明者 久我 典義

東京都墨田区太平四丁目 3 番 9 号 セイコ

ープレシジョン株式会社内

(72) 発明者 平山 巖

東京都墨田区太平四丁目 3 番 9 号 セイコ

ープレシジョン株式会社内

(72) 発明者 直井 泰史

東京都墨田区太平四丁目 3 番 9 号 セイコ

ープレシジョン株式会社内

(74) 代理人 弁理士 松田 和子

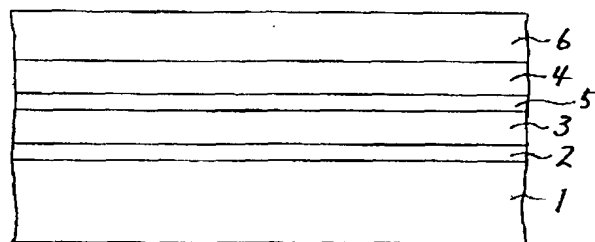
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機 E L 素子の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 積層有機膜の層間の密着性を改善し、発光輝度の向上を達成し、製造を容易にして製造コストを低減する。

【解決手段】 基板 1 上に金属をスパッタリングして陽極 2 を形成する。陽極 2 上にスピンコート法により正孔輸送層 3、電子輸送層 4 を成膜し、その上に陰極 6 を形成する。正孔輸送層 3 と電子輸送層 4 とは、有機物とバインダを溶剤にて溶解して成膜したもので、電子輸送層 4 に用いている溶剤は、正孔輸送層 3 中の有機物に対して難溶性であるが僅かに溶解可能なものである。このために、電子輸送層 4 の成膜時に、正孔輸送層 3 と電子輸送層 4 との境界に、両者に含まれる有機物が共に溶解している混合領域 5 が形成され、これによって各層の密着性が向上する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 陽極と陰極との間に正孔輸送層と電子輸送層とを有し、上記陽極と陰極との間に直流電流を印加することにより上記正孔輸送層と電子輸送層との間の界面で発光する有機EL素子の製造方法において、上記正孔輸送層と上記電子輸送層とは、有機物とバインダとを溶剤にて溶解して上記陽極上に湿式法により成膜し、  
上記正孔輸送層と上記電子輸送層との境界に、上記両層に含まれるそれぞれの上記有機物が共に溶解している混合領域を形成することを特徴とする有機EL素子の製造方法。

【請求項2】 請求項1において、上記正孔輸送層と上記電子輸送層のいずれか一方の層に用いられる溶剤は、他方の層の有機物に対して難溶性であるが僅かに溶解可能であることを特徴とする有機EL素子の製造方法。

【請求項3】 請求項1または2において、上記湿式法はスピンコート法であることを特徴とする有機EL素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、フラットパネルディスプレイやバックライト等に用いられる有機EL素子の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】有機EL素子は、対向電極の間に有機発光体を挟んだ構成からなっており、陽極からは正孔が、陰極からは電子が注入され、この注入された正孔と電子が発光性の有機物層内で再結合することにより発光するものである。このような有機EL素子としては、有機物層が単層のものや、発光する層以外に正孔注入層や電子注入層を有する多層構造のものなどが知られている。

【0003】製造方法としては、例えば、ITO等の透明電極を蒸着したガラス上に、蒸着や湿式法としてスピンコート法等により正孔輸送性、発光性及び電子輸送性を持った有機層を単層もしくは複数層形成し、その上にMg-Ag等の陰極を形成するものである。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記の製造方法において、低分子有機物層の成膜には蒸着が採用されるが、生産性が悪く、製造コストが高くなるという問題点があった。また、上記の製造方法において、高分子有機物層の成膜にはスピンコート等の湿式法が採用され、その安定性が寿命向上に役立っているが、有機物を溶剤で溶かして成膜する必要があるために、複数層を湿式法で成膜する際には、密着性などの観点から各層毎の溶剤の選定が難しく、溶剤の選択が不適当であると所望の発光特性が得られない。また、真空中で成膜する蒸着法と違い、大気中で成膜するスピンコート法では、層間に酸化膜やごみ等の不純物が入り込み易く、電荷注入に重要

な界面の密着性が低下し易いという問題点があった。

【0005】

【課題を解決するための手段】上記の問題点を解決するために、本発明は、有機EL素子の製造方法において、正孔輸送層と電子輸送層とは、有機物とバインダとを溶剤にて溶解して陽極上に湿式法により成膜し、正孔輸送層と電子輸送層との境界に、上記両層に含まれる各有機物が共に溶解している混合領域を形成する。そして、このように湿式法によって成膜し境界に混合領域を形成することにより、積層有機膜の層間の密着性が改善でき、発光輝度を向上させることができる。

【0006】

【発明の実施の形態】本発明は、陽極と陰極との間に正孔輸送層と電子輸送層とを有し、上記陽極と陰極との間に直流電流を印加することにより上記正孔輸送層と電子輸送層との間の界面で発光する有機EL素子の製造方法において、正孔輸送層と電子輸送層とは、有機物とバインダとを溶剤にて溶解して陽極上に湿式法により成膜し、正孔輸送層と電子輸送層との境界に、両者に含まれる有機物が共に溶解している混合領域を形成することを特徴としている。

【0007】上記の正孔輸送層と電子輸送層のいずれか一方の層に用いられる溶剤は、他方の層の有機物に対して難溶性であるが僅かに溶解可能であることが好ましい。この場合、難溶性とは、例えば50nm程度の層の上に更に50nm程度の層を成膜する際に、溶剤が蒸発する5～10秒程度の時間の間に混合領域が20nm程度形成される程度の溶解度を意味している。不溶性（溶解度が0）であると界面には混合領域が形成できず、両者の密着性に問題があり、反面、易溶性で溶解度が大き過ぎる場合には、混合領域が多くなり過ぎて2つの層が混然一体となりそれぞれその機能を十分に果たせなくなる。したがって、2つの層が分離してそれぞれその機能を十分に果たしながら、しかも十分な密着性が得られる混合領域を形成するのに最適の溶解度が選定される。

【0008】上記の湿式法はスピンコート法であることが好ましい。

【0009】上記のように界面に混合領域が形成されると、湿式法によって成膜する場合でも、電荷注入に重要な界面の密着性が向上し、発光輝度が高くなるように働く。また、湿式法によって製造すると、生産性が向上し、製造コストを低減するように働く。

【0010】

【実施例】以下に本発明の詳細を、図面に示した好適な実施例に沿って説明する。図1は本実施例によって製造された複層の有機EL素子を模式的に示す断面図であり、ガラス又は合成樹脂の基板1上に、金、白金、パラジウム、ITO等の金属をスパッタリングして陽極2を形成する。陽極2は、発光を透過させるために、400nm以上の波長領域で透明であることが望ましい。

【0011】次に、陽極2の上にスピンコート法により正孔輸送層3を成膜する。正孔輸送層は有機物とバインダを溶剤にて溶解したものが用いられ、例えば有機物として正孔輸送性に優れたテトラフェニルジアミン(TPD)と、バインダーであるポリメチルメタクリレート(PMMA)とを、ジクロロメタン(溶剤)で溶解し、これを陽極2の上にスピンコート法により一例として50nmの厚さに成膜する。

【0012】次に、正孔輸送層3の上にスピンコート法により電子輸送層4を成膜する。電子輸送層は有機物とバインダを溶剤にて溶解したものが用いられ、例えば有機物として発光性と電子輸送性を持ったトリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム( $Alq_3$ )と、バインダーであるPMMAとを、溶剤として1-プロパノールまたはイソブチルアルコールを用いて溶解し、これを正孔輸送層3の上にスピンコート法により一例として50nmの厚さに成膜する。

【0013】この際に電子輸送層4の溶剤として用いられる1-プロパノールまたはイソブチルアルコールは、正孔輸送層3の有機物であるTPDに対して若干の溶解性を持つ難溶性のものが選択される。このために、電子輸送層4の成膜に際して、正孔輸送層3との境界には、正孔輸送層3中の有機物であるTPDと電子輸送層4中の有機物である $Alq_3$ とが共に溶け合った混合領域5が20nm程度に亘って形成される。

【0014】このように難溶性(若干の溶解性)とは、溶剤蒸発時間の5~10秒程度の間に混合領域が20nm程度形成される程度の溶解度である。バインダであるPMMAは両方の溶剤に溶解性を持つが、溶解時間が数時間以上とかなり長いので、数秒程度ではPMMAが混合領域5中に溶解することはない。

【0015】次に、電子輸送層5の上に陰極6として、低仕事関数の金属またはその合金、例えばMg-Inを蒸着する。

【0016】このようにして製造した有機EL素子について、その発光輝度を調べた。この有機EL素子では、正孔輸送層3、電子輸送層4、混合領域5の全体に含まれる有機物のモル比は、 $TPD/Alq_3 = 0.67$ であり、 $PMMA:TPD+Alq_3 = 1:1wt\%$ になるようにして製造したもので、その最高輝度は $900cd/m^2$ であった。この輝度は、混合領域5の無い有機EL素子に比べて、一割程度の輝度の上昇が見られるものである。

【0017】図2は有機EL素子の他の実施例であって、電子輸送層を2層としたものである。即ち、第1の電子輸送層41は図1で説明した電子輸送層4と同じであって、有機物として発光性と電子輸送性を持ったトリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム( $Alq_3$ )と、バインダーであるPMMAとを、溶剤として1-プロパノールまたはイソブチルアルコールを用いて

溶解し、これを正孔輸送層3の上にスピンコート法により50nmの厚さに成膜する。この際、第1の電子輸送層41の成膜に際して、正孔輸送層3との境界に、正孔輸送層3中の有機物であるTPDと電子輸送層41中の有機物である $Alq_3$ とが共に溶け合った混合領域5が20nm程度に亘って形成されることは、上記の例と同様である。

【0018】次に、第1の電子輸送層41の上に第2の電子輸送層42をスピンコート法により一例として50nmの厚さに成膜する。第2の電子輸送層42は、有機物として電子輸送性を有するフェニルピフェニルオキサジアゾール(Bu-PBD)と、バインダーであるPMMAとを、溶剤としてジクロロメタンを用いて溶解し、これを第1の電子輸送層41の上にスピンコート法により50nmの厚さに成膜したものである。第2の電子輸送層42を成膜する際には、第1の電子輸送層41の成膜後、その溶剤がある程度乾燥してから行うのが望ましく、両層間の密着度は十分に得られるが混合領域を形成する程度には溶解しないように形成するのが望ましい。本発明では、混合領域5を正孔輸送層3と電子輸送層(この例では第1の電子輸送層41)との境界に形成する。その他の図1に示した実施例と実質的に同一の箇所には同一の符号を付し詳細な説明は省略している。

【0019】正孔輸送層3と第1の電子輸送層41との境界に混合領域5を形成したこの実施例においても、界面密着性が向上し、発光輝度が上昇した点は、図1の例と同様である。

#### 【0020】

【発明の効果】正孔輸送層と電子輸送層との境界に混合領域が形成することにより、湿式法によって成膜しても、電荷注入に重要な層間の密着性を向上でき、発光輝度を高くできる。

【0021】また、一方の層の溶剤として他方の層の有機物に対して難溶性であるが溶解可能なものを用いると、混合領域の製造が容易であるとともに各層のそれぞれの機能を保ち得る。

【0022】さらに、スピンコート法等の湿式法によって製造することにより、生産性が向上し、製造コストを低減することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

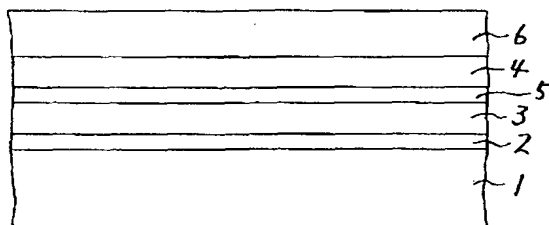
【図1】本発明の製造方法により製造された有機EL素子の断面図である。

【図2】他の実施例を示す断面図である。

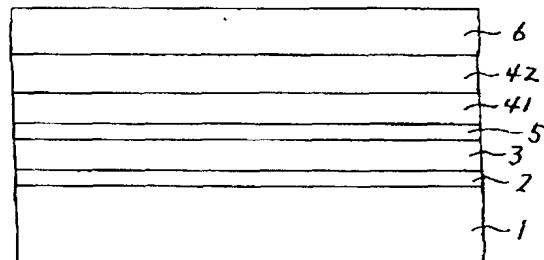
#### 【符号の説明】

- 2 陽極
- 3 正孔輸送層
- 4 電子輸送層
- 5 混合領域
- 6 陰極
- 41 第1の電子輸送層

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 高橋 英雄  
東京都墨田区太平四丁目3番9号 セイコ  
ープレシジョン株式会社内